

# (12) DEMANDE INTER ONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle

Bureau international



### - 1 1881 | 1884 | 1884 | 1884 | 1884 | 1884 | 1884 | 1885 | 1885 | 1885 | 1885 | 1885 | 1885 | 1885 | 1885 | 1

(43) Date de la publication internationale 31 juillet 2003 (31.07.2003)

**PCT** 

(10) Numéro de publication internationale WO 03/062728 A1

- (51) Classification internationale des brevets<sup>7</sup>: F28D 7/02, B01J 19/00
- (21) Numéro de la demande internationale :

PCT/FR03/00177

(22) Date de dépôt international:

20 janvier 2003 (20.01.2003)

(25) Langue de dépôt :

français

(26) Langue de publication :

français

(30) Données relatives à la priorité :

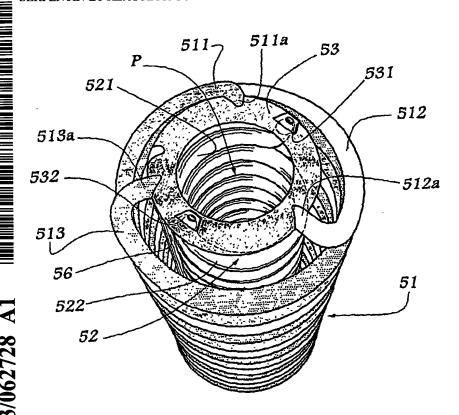
02 00706

21 janvier 2002 (21.01.2002) FR

- (71) Déposant (pour tous les États désignés sauf US): RHO-DIA POLYAMIDE INTERMEDIATES [FR/FR]; avenue Ramboz, F-69190 SAINT FONS (FR).
- (72) Inventeurs; et
- (75) Inventeurs/Déposants (pour US seulement): NURIS, Thierry [FR/FR]; 19, rue Georges Bizet, F-69720 SAINT BONNET DE MURE (FR). THIERRY, Jean-François [FR/FR]; 3, rue des Cerisiers, F-69340 FRANCHEVILLE (FR).
- (74) Mandataire: MYON, Gérard; Cabinet LAVOIX, 62 rue de Bonnel, F-69448 LYON Cedex 03 (FR).

[Suite sur la page suivante]

- (54) Title: COIL FOR COOLANT CIRCULATION, METHOD FOR MAKING SAME AND REACTOR COMPRISING SAME
- (54) Titre: SERPENTIN DE CIRCULATION D'UN FLUIDE CALOPORTEUR, PROCEDE DE FABRICATION D'UN TEL SERPENTIN ET REACTEUR COMPRENANT UN TEL SERPENTIN



- The invention (57) Abstract: concerns a coil comprising a first helical tube segment (511) and a second helical tube segment (512, 513) extending, parallel to the first helical segment (511), between a distributor (53) and a manifold (54), said first and second helical segments (511, 512, 513) being centered on a common geometrical axis (X5), with substantially the same bending radius (R1) and nested, such that they form together a globally cylindrical bundle (51). The method comprises a step which consists in interleaving the helical tube segments (511-513) so as to form a globally cylindrical bundle. The invention also concerns a reactor equipped with such a coil which can be used for treating a viscous medium or for carrying out chemical reactions, such as 6-6 polyamide polymerization.
- (57) Abrégé: Ce serpentin comprend un premier segment de tube hélicoïdal (511) et un second segment de tube hélicoïdal (512, 513) qui s'étend, en parallèle au premier segment hélicoïdal
- (511), entre un distributeur (53) et un collecteur (54), ces premier et second segments hélicoïdaux (511, 512, 513) étant centrés sur un même axe géométrique (X5), cintrés sensiblement avec le même rayon (R1) et imbriqués, de telle sorte qu'ils forment ensemble une nappe (51) de forme globalement cylindrique.Le procédé

[Suite sur la page suivante]





- (81) États désignés (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) États désignés (régional): brevet ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), brevet eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR),

brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### Publiée:

- avec rapport de recherche internationale
- avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si des modifications sont reçues

En ce qui concerne les codes à deux lettres et autres abréviations, se référer aux "Notes explicatives relatives aux codes et abréviations" figurant au début de chaque numéro ordinaire de la Gazette du PCT.

# SERPENTIN DE CIRCULATION D'UN FLUIDE CALOPORTEUR, PROCEDE DE FABRICATION D'UN TEL SERPENTIN ET REACTEUR COMPRENANT UN TEL SERPENTIN

5

10

25

30

L'invention a trait à un serpentin de circulation de fluide caloporteur et à un procédé de fabrication d'un tel serpentin. L'invention a également trait à un réacteur pour le traitement d'un milieu visqueux ou pour la réalisation de réactions chimiques en milieu visqueux, telles qu'une polymérisation, un tel réacteur comprenant un tel serpentin. L'invention a enfin trait à l'utilisation d'un tel réacteur.

polymérisation du de réaliser la Τl est connu polyamide de façon continue ou discontinue. les 15 méthodes dites discontinues, on procède par lots avec des réacteurs de type autoclave. Dans ce cas, il est connu d'évaporer l'eau d'une solution aqueuse de deux monomères l'eau produite par leur polymérisation, grâce à apport de chaleur externe. 20

Cet apport de chaleur doit être suffisant pour que la réaction de polymérisation ait lieu dans un intervalle de temps compatible avec les critères de productivité en vigueur dans le monde industriel. L'apport de chaleur ne doit pas être trop important afin d'éviter, autant que faire se peut, d'entraîner l'un des monomères avec la phase vapeur. Si une quantité de monomères est entraînée avec la phase vapeur, cette quantité doit être constante afin que les caractéristiques du polyamide obtenu soient reproductibles. L'apport de chaleur permet, par ailleurs, de contrôler la réaction de polymérisation, dans la mesure où il permet de piloter l'évaporation de l'eau.

Pour apporter de la chaleur au milieu réactionnel, on a utilisé dans des autoclaves de faible capacité, c'est-à-

10

15

20

25

30

dire de volume inférieur à  $3m^3$ , des serpentins dans lesquels circule un fluide caloporteur.

Pour des réacteurs de capacité plus importante, en particulier de l'ordre de 5 à 6 m³, on a pu envisager d'utiliser un serpentin et un agitateur, ce dernier visant à améliorer l'homogénéité du milieu réactionnel et à augmenter le coefficient de transfert thermique.

Cependant, cette solution n'est pas transposable à réacteurs de grande capacité, en particulier capacité supérieure à  $8m^3$ , car il n'est pas possible d'augmenter de façon suffisante les surfaces d'échange constituées par les parois du serpentin. En effet, si le diamètre global du serpentin est augmenté, il n'est alors plus possible de loger dans la cuve du réacteur agitateur efficace. Si l'on diminue le diamètre des tubes constitutifs du serpentin, les pertes de charge liées à la circulation de fluide caloporteur dans ces tubes augmentent de façon significative. Si l'on crée un serpentin avec une forme très élaborée, on entrave la re-circulation axiale du milieu réactionnel et on annule l'effet dit « de pompage » au centre de l'agitateur. Enfin, un serpentin de forme élaborée avec des tubes de faible diamètre ne satisferait pas aux critères de résistance mécaniques lui permettant de résister à une utilisation prolongée et/ou à des incidents de fabrication.

C'est à ces inconvénients qu'entend plus particulièrement remédier l'invention en proposant un nouveau serpentin qui permet un apport de chaleur efficace à un milieu réactionnel de volume important, tout en étant compatible avec les dimensions d'une cuve de réacteur et avec un agitateur.

Dans cet esprit, l'invention concerne un serpentin de circulation d'un fluide caloporteur, ce serpentin comportant au moins un segment de tube enroulé selon une

30

génératrice hélicoidale, caractérisé en ce qu'il comprend au moins un second segment de tube enroulé selon une génératrice hélicoidale, s'étendant en parallèle au premier segment entre un distributeur et un collecteur, ces premier et second segments étant centrés sur un même axe géométrique, cintrés avec sensiblement le même rayon et imbriqués, de telle sorte qu'ils forment ensemble une nappe de forme globalement cylindrique.

deux segments l'utilisation de à Grâce hélicoïdaux imbriqués, il est possible que ces segments 10 aient chacun une longueur relativement courte, de telle de charge qu'ils génèrent que la perte sorte relativement faible, alors même que la section du tube utilisé peut être également faible. En outre, le fait que de tube hélicoïdaux ont une lonqueur seaments 15 les induit que leur pente peut être relativement courte relativement importante, c'est-à-dire plus importante que dans le cas d'un unique segment circulaire s'étendant sur toute la hauteur du serpentin. Ainsi, dans le cas où le fluide caloporteur est alimenté en phase vapeur pouvant se 20 condenser dans les tubes, l'écoulement du fluide condensé dans ces segments est plus rapide, d'où un risque moins important d'accumulation de condensats et un encombrement moindre en liquide. Le fait que ces segments forment une nappe cylindrique évite qu'ils ne perturbent de façon 25 significative l'écoulement ou la re-circulation du milieu réactionnel dans la partie centrale d'un réacteur.

Selon un premier aspect avantageux et non obligatoire de l'invention, le serpentin comprend une seconde nappe, formée d'au moins un segment de tube enroulé selon une génératrice hélicoïdale, s'étendant entre le distributeur et le collecteur et centré sur l'axe des premiers segments hélicoïdaux, cette seconde nappe étant de forme globalement cylindrique, avec un rayon inférieur au rayon de la

20

25

30

première nappe. Dans ce cas; la seconde nappe est avantageusement formée par au moins deux segments de tube, hélicoidaux, imbriqués et s'étendant en parallèle entre le distributeur et le collecteur.

Selon d'autres aspects avantageux mais non obligatoires de l'invention, le serpentin incorpore une ou plusieurs des caractéristiques suivantes :

- La première nappe est formée par trois segments de tube hélicoïdaux imbriqués.

- Les segments hélicoïdaux ont sensiblement la même longueur et/ou induisent sensiblement la même perte de charge à l'écoulement du fluide caloporteur, entre le distributeur et le collecteur.

- Il est prévu un tube qui s'étend, selon une 15 direction globalement parallèle à l'axe de la première nappe, entre les première et seconde nappes, ce tube étant raccordé, soit au distributeur, soit au collecteur.

- Le distributeur et/ou le collecteur sont en forme de tore et centrés sur l'axe de la première nappe. Dans ce cas, on peut prévoir, que le distributeur et/ou le collecteur sont cintrés avec un rayon sensiblement égal au rayon de la première nappe ou, éventuellement, de la seconde nappe, de sorte qu'ils sont sensiblement dans le prolongement de cette première nappe ou, éventuellement, de cette seconde nappe.

L'invention concerne également un procédé de fabrication d'un serpentin tel que précédemment décrit et, plus spécifiquement un procédé qui comprend une étape consistant à imbriquer deux segments de tube enroulés selon des génératrices hélicoidales et cintrés avec sensiblement le même rayon, de façon à former une nappe de forme globalement cylindrique.

CT/FR03/00177

5

10

15

20

25

30

On imbrique avantageusement les segments de tube par un mouvement de « vissage » autour d'un axe géométrique commun à ces segments.

L'invention concerne également un réacteur pour le traitement d'un milieu visqueux ou la réalisation de réactions chimiques en milieu visqueux, telle qu'une polymérisation, ce réacteur comprenant, entre autres, un serpentin tel que précédemment décrit.

Selon un premier aspect avantageux de l'invention, ce réacteur peut comprendre un agitateur disposé autour ou à l'intérieur du serpentin. L'agitateur peut être suspendu au du réacteur et former une cage entourant le plafond l'évacuation du fluide l'alimentation et serpentin, caloporteur vers ou à partir du serpentin étant effectuées à travers le fond du réacteur. Selon un autre mode de réalisation de l'invention, l'agitateur peut être formé par une vis sans fin centrée sur l'axe géométrique d'une nappe intérieure ou de la nappe unique du serpentin.

Selon un autre aspect avantageux de l'invention, la nappe intérieure ou la nappe unique du serpentin forme un puits central de rayon compris entre 20 et 70%, du rayon de la cuve, ce qui permet une bonne re-circulation du milieu réactionnel dans la cuve. Dans le cas d'un serpentin à deux nappes, le puits central formé par la nappe intérieure a, de préférence, un rayon compris entre 20 et 40% du rayon de la cuve.

L'invention concerne enfin une utilisation d'un réacteur tel que précédemment décrit ayant un volume supérieur à environ 8m³ pour le traitement d'un milieu visqueux ou la préparation de polymères tels que des polyamides, en particulier le polyamide 6-6, ou des polyesters. Cette utilisation peut être mise en œuvre de façon discontinue, par exemple pour la fabrication de lots de polymères de volume important, ou de façon continue.

25

30

L'invention sera mieux comprise et d'autres avantages de celle-ci apparaîtront plus clairement à la lumière de la description qui va suivre d'un mode de réalisation d'un serpentin et d'un réacteur conformes à l'invention, de leur fabrication et utilisation respectives, donnée uniquement à titre d'exemple et faite en référence aux dessins annexés dans lesquels :

- la figure 1 est une coupe longitudinale de principe d'un réacteur conforme à l'invention équipé d'un serpentin conforme à l'invention;
- la figure 2 est une demi-coupe du serpentin représenté sur la figure 1 ;
- la figure 3 est une représentation schématique de principe d'une étape de fabrication du serpentin de la 15 figure 2 ;
  - la figure 4 est une vue analogue à la figure 3 pour une autre étape de fabrication du serpentin ;
  - la figure 5 est une vue de dessus du serpentin de la figure 2 ;
- la figure 6 est une vue de dessous du serpentin de la figure 2 et
  - la figure 7 est une vue en perspective du serpentin des figures 2 à 6.

Le réacteur 1 représenté à la figure 1 est utilisé pour la polymérisation de polyamide. Il a un volume V de l'ordre de 11 m³. Ce réacteur 1 comprend une cuve 2 de forme globalement cylindrique avec un fond 21 globalement tronconique. Un couvercle non représenté est prévu pour être monté sur la cuve 2 afin d'en constituer le plafond et d'isoler de façon étanche le volume intérieur V du réacteur 1 par rapport au milieu ambiant.

Un agitateur 4 est prévu dans le volume V. Il est entraîné par un arbre 41 aligné sur un axe central X-X' du réacteur et traversant le couvercle. L'agitateur 4 comprend

10

15

20

25

30

des pales globalement hélicoïdales montées sur une cage qui entoure un serpentin 5. Pour la clarté du dessin l'agitateur 4 est silhouetté en traits mixtes uniquement à la figure 1.

D'autres formes d'agitateurs peuvent être envisagées, pour autant qu'elles sont compatibles avec la place disponible dans le volume V.

La cuve 2 est à double enveloppe pour permettre la circulation d'un fluide caloporteur, ceci permettant de chauffer le volume V.

Un serpentin 5 est installé à l'intérieur de la cuve 2 et est alimenté en fluide caloporteur à partir d'un vaporiseur 6 qui peut être de tout type connu. Deux traversées de cloison 59 relient le serpentin 5 à des tubes 61 et 62 permettant respectivement l'alimentation du serpentin 5 en fluide caloporteur chaud et l'évacuation de fluide caloporteur comparativement moins chaud en direction du vaporiseur 6.

Dans le cas d'espèce, le fluide caloporteur est une huile en phase vapeur à une température comprise entre 300 et 350°C. L'huile en phase vapeur se comporte comme un corps pur et travaille en chaleur latente, de sorte qu'elle conserve sa température, si bien que le milieu réactionnel est soumis à un apport calorifique globalement homogène sur la longueur de serpentin.

Les flèches  $E_1$  et  $E_2$  représentent l'écoulement de l'huile dans les traversées de cloison 59.

Comme il ressort plus particulièrement des figures 2 à 7, le serpentin 5 est formé de deux nappes de tubes. Plus spécifiquement, une première nappe 51 est formée de tubes cintrés à un rayon  $R_1$  sensiblement constant. Une seconde nappe de tubes 52 est formée de tubes cintrés avec un rayon  $R_2$  inférieur au rayon  $R_1$ . Les nappes 51 et 52 sont sensiblement cylindriques et centrées sur un axe central  $X_5$ 

10

15

20

25

du serpentin 5, cet axe étant confondu avec l'axe X-X' lorsque le serpentin est installé dans le réacteur 1.

La nappe 51 est formée de trois segments de tube 511, 512 et 513 enroulés chacuns selon une génératrice hélicoïdale et imbriqués les uns dans les autres, c'est-àdire formant ensemble la nappe 51.

De la même façon, la nappe 52 est formée de deux segments de tube 521 et 522 enroulés chacun selon une génératrice hélicoïdale et imbriqués les uns dans les autres.

Comme il ressort de la figure 3, la nappe 51 est formée en « vissant » les segments 511, 512 et 513 autour de l'axe  $X_5$  qui est leur axe central commun. La flèche  $F_1$  représente l'imbrication du segment 512 dans le segment 511, cette imbrication se traduisant par une progression du segment 512 parallèlement à l'axe  $X_5$ , comme représenté par la flèche  $F_2$ . De la même façon, le segment 513 peut être imbriqué entre les segments 511 et 512.

Comme cela ressort de la figure 4, la nappe 52 est formée du segment 522 imbriqué dans le segment 521 grâce à un mouvement de vissage représenté par les flèches  $F_1$  et  $F_2$ .

Lorsque les deux nappes 51 et 52 sont conformées chacune avec une forme globalement cylindrique et avec un rayon  $R_1$  ou  $R_2$  pré-défini, il est possible de relier les segments de tube 511 à 513, 521 et 522 à une nourrice d'alimentation 53 formant distributeur et à un collecteur de sortie 54, cette nourrice et ce collecteur étant chacun de forme globalement torique et centrés sur l'axe  $X_5$ .

Les éléments 53 et 54 ont un diamètre supérieur à celui des segments de tube 511 à 513, 521 et 522, de sorte qu'ils permettent d'alimenter efficacement ces segments en fluide caloporteur et de collecter efficacement le fluide provenant de ces segments, comme ceci est représenté par les flèches d'écoulement E aux figures 5 et 6.

10

15

Le rayon  $R_3$  du tore formé par la nourrice 53 est choisi égal au rayon  $R_2$ , de même que le rayon  $R_4$  du collecteur de sortie 54. Ainsi, les éléments 53 et 54 sont globalement alignés avec la nappe 52, de telle sorte qu'ils ne perturbent pas un écoulement dans la partie centrale du serpentin 5, cet écoulement étant représenté par la flèche E' à la figure 1.

La nourrice 53 est pourvue de deux oreilles de levage 531 et 532 permettant de supporter le serpentin 5 lors de sa mise en place dans la cuve 2 ou lors de son extraction. D'autres moyens de levage peuvent être envisagés, sur la nourrice 53 ou sur d'autres parties du serpentin 5.

Un tube 56 globalement parallèle à l'axe X<sub>5</sub>, est logé entre les nappes 51 et 52, ce tube permettant d'alimenter la nourrice 53 à partir de la traversée de cloison 59 reliée au tube 61 du vaporisateur 6. Ce tube 56 a une section interne sensiblement égale à celle de la nourrice 53.

Comme il ressort plus particulièrement de la figure 5, les trois segments de tube 511, 512 et 513 sont reliés à la 20 nourrice 53 par des piquages 511a, 512a et 513a s'étendant selon une direction essentiellement radiale par rapport à la nourrice 53. Par ailleurs, les tubes 521 et 522 sont reliés à cette nourrice 53 par des piquages 521a et 522a s'étendant en dessous de la nourrice 53, c'est-à-dire selon 25 une direction globalement parallèle à l'axe  $X_5$ , alors que globalement 513a sont 512a et 511a, piquages perpendiculaires à cet axe.

De la même façon et comme il ressort de la figure 6,

les tubes 511 à 513 sont reliés par des piquages 511b, 512b

et 513b essentiellement radiaux au collecteur 54, alors que

les tubes 521 et 522 sont reliés au collecteur 54 par des

piquages essentiellement axiaux 521b et 522b.

10

15

20

25

30

On peut choisir les rayons  $R_1$  et  $R_2$ , la hauteur  $h_5$  du serpentin 5 et le positionnement des éléments 53 et 54, de telle sorte que les segments de tube 511 à 513, 521 et 522 aient sensiblement la même longueur. Ces segments ont la même section interne. Ils induisent alors sensiblement la même perte de charge sur l'écoulement de fluide caloporteur.

Au vu de ce qui précède, on comprend que les segments 511, 512, 513, 521 et 522 sont montés en parallèle les uns par rapport aux autres entre les éléments 53 et 54, ce qui permet d'obtenir des pertes de charges relativement peu importantes en tenant compte, en particulier, du fait que la perte de charge globale des trois tubes 511, 512 et 513 est sensiblement plus faible que celle qui serait générée par un unique tube en configuration hélicoïdale formant à lui seul une nappe aussi dense que la nappe 51.

En outre, la pente unitaire de chacun des tubes 511 à 513, qui peut être définie, comme illustré aux figures 1 et 3, par l'angle  $\alpha_1$  entre un tube et une normale  $Y_5$  à l'axe 5, est sensiblement plus importante que la pente qu'aurait un unique tube configuré en hélice pour constituer à lui seul la nappe 51. Ceci diminue fortement les risques d'accumulation de condensats à l'intérieur des segments 511 à 513 et minimise la rétention en liquide dans la partie inférieure de ces tubes.

Les observations qui précèdent valent également pour les tubes 521 et 522 de la seconde nappe 52.

Comme le tube 56 s'étend selon une direction globalement parallèle à l'axe X-X' de la cuve 2, il ne perturbe pas sensiblement l'écoulement E' du milieu réactionnel.

En pratique on choisit le rayon  $R_2$  de la nappe intérieure 52 avec une valeur comprise entre 20 et 40% du rayon R de la cuve 2. Dans ces conditions, le puits central

10

15

20

25

P formé par la nappe 52 dans le volume V du réacteur 1 est suffisamment large pour que la re-circulation de milieu réactionnel générée par l'agitateur 4 soit efficace.

On note également que la construction du serpentin 5 permet que sa géométrie soit adaptée à celle du fond 21 de la cuve 2, de sorte que le volume mort du réacteur 1, c'est-à-dire sa partie où il se crée peu de re-circulation, est limité au maximum.

L'invention a été représentée avec un serpentin 5 comprenant une nappe externe 51 et une nappe interne 52. Elle est cependant applicable avec un serpentin comprenant une unique nappe composée d'au moins deux segments de tube imbriqués avec une configuration hélicoïdale.

Dans le cas d'un serpentin comprenant une seule nappe, le rayon de cette nappe peut être choisi avec une valeur comprise entre 20 et 70% du rayon de la cuve de réacteur.

L'invention a été représentée avec la nappe externe 51 comprenant trois segments de tube 511, 512 et 513. Elle est cependant applicable avec une nappe comprenant deux segments ou, au contraire, plus de trois segments.

L'invention a été représentée avec un agitateur 4 disposé autour du serpentin 5. Elle est cependant également applicable avec un agitateur qui pénètrerait dans le puits central du serpentin 5. Dans ce cas, les rayons  $R_1$  et  $R_2$  du serpentin 5 pourraient être augmentés et l'agitateur pourrait avoir la forme d'une vis sans fin.

L'invention est indépendante du type exact du vaporisateur 6 et de la nature du fluide caloporteur utilisé.

30 Sur les figures 3, 4 et 7, des trames différentes ont été utilisées uniquement pour différencier visuellement les différentes parties du serpentin 5.

#### REVENDICATIONS

- 1. Serpentin de circulation d'un fluide caloporteur, ledit serpentin comprenant au moins un segment de tube enroulé selon une génératrice hélicoidale, caractérisé en ce que ledit serpentin comprend au moins un second segment génératrice selon une enroulé 513) (512, hélicoïdale et s'étendant en parallèle audit segment (511) entre un distributeur (53) et un collecteur 10 (54), lesdits premier et second segments étant centrés sur un même axe géométrique  $(X_5)$ , cintrés avec sensiblement le même rayon (R<sub>1</sub>) et imbriqués, de telle sorte qu'ils forment ensemble une nappe (51) de forme globalement cylindrique.
- 2. Serpentin selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il comprend une seconde nappe (52) formée d'au moins un segment de tube (521, 522) enroulé selon une géométrie hélicoïdale, s'étendant entre ledit distributeur (53) et ledit collecteur (54) et centré sur ledit axe (X<sub>5</sub>), ladite seconde nappe étant de forme globalement cylindrique, avec un rayon (R<sub>2</sub>) inférieur au rayon (R<sub>1</sub>) de la première nappe (51).
  - 3. Serpentin selon la revendication 2, caractérisé en ce que ladite seconde nappe (52) est formée par au moins deux segments de tubes (521, 522) enroulés selon des génératrices hélicoïdales, imbriqués et s'étendant en parallèle entre ledit distributeur (53) et ledit collecteur (54).
- 4. Serpentin selon l'une des revendications 30 précédentes, caractérisé en ce que ladite première nappe (51) est formée par trois segments de tube (511, 512, 513) enroulés selon des génératrices hélicoïdales et imbriqués.
  - 5. Serpentin selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que lesdits segments (511,

10

25

- 512, 513, 521, 522) ont sensiblement la même longueur et/ou induisent sensiblement la même perte de charge à l'écoulement dudit fluide caloporteur, entre ledit distributeur (53) et ledit collecteur (54).
- 6. Serpentin selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il comprend un tube (56) s'étendant, selon une direction globalement parallèle audit axe  $(X_5)$ , entre lesdites première (51) et seconde (52) nappes, ledit tube étant raccordé soit audit distributeur (53), soit audit collecteur (54).
- 7. Serpentin selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que ledit distributeur (53) et/ou ledit collecteur (54) sont en forme de tore et centrés sur ledit axe  $(X_5)$ .
- 8. Serpentin selon la revendication 7, caractérisé en ce que ledit distributeur (53) et/ou ledit collecteur (54) sont cintrés avec un rayon (R3, R4) sensiblement égal au rayon (R2) de ladite première nappe (51) ou, éventuellement, de ladite seconde nappe (52), de sorte qu'ils sont sensiblement dans le prolongement, de ladite première nappe ou, éventuellement, de ladite seconde nappe.
  - de fabrication serpentin d'un Procédé de 9. caloporteur, ledit serpentin d'un fluide circulation comprenant au moins un segment de tube enroulé selon une génératrice hélicoidale, caractérisé en ce qu'il comprend une étape consistant à imbriquer  $(F_1, F_2)$ ledit segment (511) avec au moins un second segment de tube (512, 513) enroulé selon une génératrice hélicoïdale cintré avec sensiblement le même rayon  $(R_1)$  que le premier segment, de de forme globalement façon à former une nappe (51) cylindrique.
  - 10. Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce qu'on imbrique lesdits segments par un mouvement de

20

25

30

vissage  $(F_1$  ,  $F_2)$  autour d'un axe géométrique commun  $(X_5)$  auxdits segments.

- 11. Réacteur pour le traitement d'un milieu visqueux ou la réalisation de réactions chimiques en milieu visqueux, ledit réacteur comprenant une cuve, caractérisé en ce qu'il comprend un serpentin (5) conforme à l'une des revendications 1 à 8, ou fabriqué selon l'une des revendications 9 ou 10.
- 12. Réacteur selon la revendication 11, caractérisé en 10 ce qu'il comprend un agitateur (4) disposé autour ou à l'intérieur dudit serpentin (5).
- 13. Réacteur selon la revendication 12, caractérisé en ce que ledit agitateur est suspendu au plafond dudit réacteur (1) et forme une cage entourant ledit serpentin (5), l'alimentation et l'évacuation (56, 59, 61, 62) du fluide caloporteur vers ou à partir dudit serpentin étant effectuées à travers le fond (21) dudit réacteur.
  - 14. Réacteur selon la revendication 12, caractérisé en ce que ledit agitateur est formé par une vis sans fin centrée sur l'axe géométrique  $(X_5)$  d'une nappe intérieure (52) ou de la nappe unique (51) dudit serpentin (5).
  - 15. Réacteur selon l'une des revendications 11 à 14, caractérisé en ce que la nappe intérieure (52) ou la nappe unique (51) dudit serpentin forme un puits central (P) de rayon ( $R_2$ ) compris entre 20 et 70% du rayon (R) de ladite cuve (2), de préférence compris entre 20 et 40% dudit rayon dans le cas d'une nappe intérieure.
  - 16. Utilisation d'un réacteur (1) de volume (V) supérieur à environ  $8m^3$  selon l'une des revendications 11 à 15 pour le traitement d'un milieu visqueux.
  - 17. Utilisation selon la revendication 16 pour la réalisation d'une réaction de polymérisation en milieu visqueux.

- 18. Utilisation selon la revendication 16 ou 17 pour la réalisation d'une réaction de polymérisation, en discontinu, en milieu visqueux.
- 19. Utilisation selon la revendication 16 ou 17 pour 5 la réalisation d'une réaction de polymérisation, en continu, en milieu visqueux.

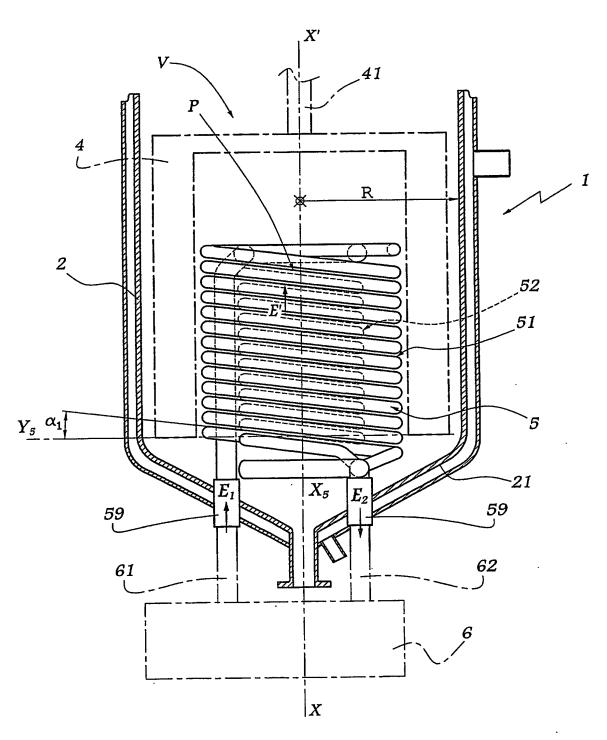
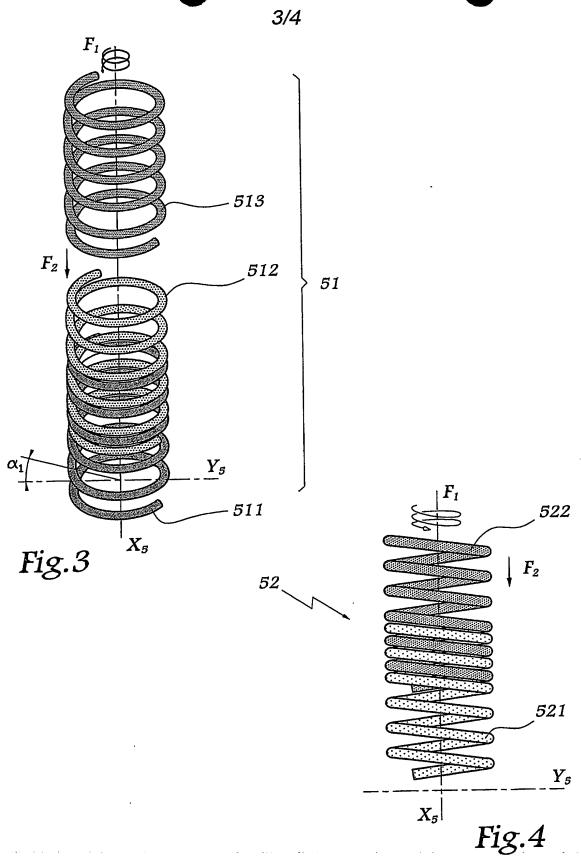
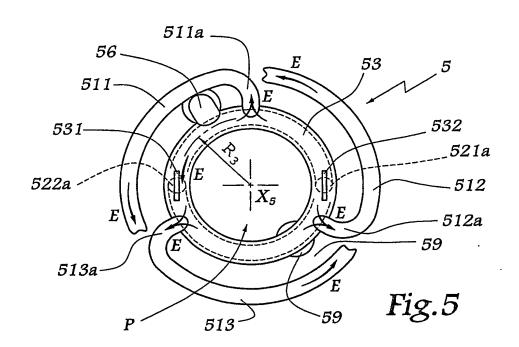
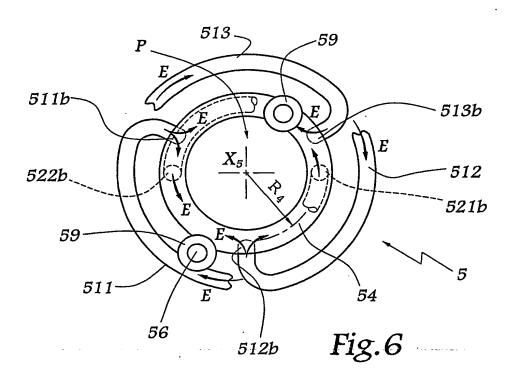


Fig. 1









#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/FR\_03/00177

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 F28D7/02 B01J19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

#### B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC  $7\ B01J\ F28D$ 

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

#### EPO-Internal

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
Х	NL 7 900 648 A (SCHELDE NV)	1-5,9,10	
Υ	29 July 1980 (1980-07-29) page 4, line 28 -page 8, line 19; figures	6-8,11, 12,15-17	
Υ .	US 2 875 027 A (DYE ROBERT F) 24 February 1959 (1959-02-24) the whole document	6-8,11, 12,15	
Y	EP 0 659 476 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 28 June 1995 (1995-06-28) page 6, column 20, line 23 page 7, line 32 - line 33; claims; figures	11,12, 15-17	
X	US 4 371 036 A (FORDSMAND MARC) 1 February 1983 (1983-02-01) column 4, line 50 - line 56; figures	1,4,5	
	_/		

X Further documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family members are listed in annex.
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the International filing date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another clation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  "&" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the International search report
2 June 2003	06/06/2003
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Mootz, F

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PC1/FR 03/00177

	ntion) DOCUMENTS CONSIDER. BE RELEVANT	101/18 03/001//
C.(Continue Category °	citation) DOCUMENTS CONSIDER. BE RELEVANT  Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
х	GB 2 099 127 A (ODDY DONALD) 1 December 1982 (1982-12-01) page 3, line 71 - line 93; figures	1,5
	•	
v	•	
	-	

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PC1/FR 03/00177

Patent document cited in search report		ublication date		Patent family member(s)	Publication date
NL 7900648	Α	29-07-1980	NONE		
us 2875027	Α	24-02-1959	BE	556805 A	
EP 0659476	Α	28-06-1995	CA EP JP JP NO US	2139160 A1 0659476 A1 3197447 B2 7233206 A 945037 A 5610245 A	28-06-1995 28-06-1995 13-08-2001 05-09-1995 28-06-1995 11-03-1997
US 4371036	Α	01-02-1983	NONE	•	
GB 2099127	Α	01-12-1982	NONE	<del></del>	

#### RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE



#### A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMA CIB 7 F28D7/02 B01J19/00

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

#### B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 7 B01J F28D

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)

#### **EPO-Internal**

Catégorie °	Identification des documents, cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
Х	NL 7 900 648 A (SCHELDE NV)	1-5,9,10
Υ	29 juillet 1980 (1980-07-29) page 4, ligne 28 -page 8, ligne 19; figures	6-8,11, 12,15-17
Y	US 2 875 027 A (DYE ROBERT F) 24 février 1959 (1959-02-24) 1e document en entier	6-8,11, 12,15
Υ	EP 0 659 476 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 28 juin 1995 (1995-06-28) page 6, colonne 20, ligne 23 page 7, ligne 32 - ligne 33; revendications; figures	11,12, 15-17
X	US 4 371 036 A (FORDSMAND MARC) 1 février 1983 (1983-02-01) colonne 4, ligne 50 - ligne 56; figures	1,4,5
		•

Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents	Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe
"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent  "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date  "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)  "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens	T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention X" document particulièrement pertinent; l'inven tion revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément Y" document particulièrement pertinent; l'inven tion revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier &" document qui fait partie de la même famille de brevets
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée	Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale
2 juin 2003	06/06/2003
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentiaan 2	Fonctionnaire autorisé
NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Mootz, F

#### RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demonde Internationale No
PC1/FR 03/00177

atégorie °	OCUMENTS CONSIDERES COM RTINENTS Identification des documents cités, avec,le cas échéant, l'indicationdes passages pertinents	no. des revendications visées
	GB 2 099 127 A (ODDY DONALD) 1 décembre 1982 (1982-12-01) page 3, ligne 71 - ligne 93; figures	1,5
		·
•		

## RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande Internationale No
PCT FR 03/00177

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication		embre(s) de la ille de brevet(s)	Date de publication
NL 7900648	Α	29-07-1980	AUCUN		
US 2875027	. A	24-02-1959	BE	556805 A	
EP 0659476	A	28-06-1995	CA EP JP JP NO US	2139160 A1 0659476 A1 3197447 B2 7233206 A 945037 A 5610245 A	28-06-1995 28-06-1995 13-08-2001 05-09-1995 28-06-1995 11-03-1997
US 4371036	Α	01-02-1983	AUCUN		
GB 2099127	Α	01-12-1982	AUCUN		